

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-335677
(43)Date of publication of application : 04.12.2001

(51)Int.Cl. C08L 63/00
C08K 3/00
C08K 3/04
H01L 23/29
H01L 23/31

(21)Application number : 2000-108057 (71)Applicant : HITACHI CHEM CO LTD
(22)Date of filing : 10.04.2000 (72)Inventor : TAKEMIYA KEIZO
ABE HIDENORI

(30)Priority
Priority number : 11263856 Priority date : 17.09.1999 Priority country : JP
2000083233 21.03.2000
JP

(54) EPOXY RESIN COMPOSITION FOR SEALING, AND ELECTRONIC PARTS DEVICE

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an epoxy resin composition for sealing having excellent laser marking property and electric characteristics together with good moldability which can be fabricated into an electronic parts device with narrow gaps between pads or wires without occurrence of rejected article from short circuit due to electroconductive materials also with high reliability and excellent appearance of the surface of the package.

SOLUTION: This epoxy resin composition comprises as the indispensable components (A) an epoxy resin, (B) a curing agent, (C) non-electroconductive carbon, and (D) an inorganic filler. This electronic parts device is equipped with elements sealed by the epoxy resin composition.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2001-335677

(P2001-335677A)

(43)公開日 平成13年12月4日 (2001.12.4)

(51) Int.Cl.⁷
C 08 L 63/00
C 08 K 3/00
3/04
H 01 L 23/29
23/31

識別記号

F I
C 08 L 63/00
C 08 K 3/00
3/04
H 01 L 23/30

テ-マ-ト^{*} (参考)
C 4 J 0 0 2
4 M 1 0 9
R

審査請求 未請求 請求項の数 4 OL (全 9 頁)

(21)出願番号

特願2000-108057(P2000-108057)

(22)出願日

平成12年4月10日 (2000.4.10)

(31)優先権主張番号 特願平11-263856

(32)優先日 平成11年9月17日 (1999.9.17)

(33)優先権主張国 日本 (J P)

(31)優先権主張番号 特願2000-83233(P2000-83233)

(32)優先日 平成12年3月21日 (2000.3.21)

(33)優先権主張国 日本 (J P)

(71)出願人 000004455

日立化成工業株式会社

東京都新宿区西新宿2丁目1番1号

(72)発明者 武宮 慶三

茨城県結城市大字鹿塙1772-1 日立化成
工業株式会社下館事業所内

(72)発明者 阿部 秀則

茨城県結城市大字鹿塙1772-1 日立化成
工業株式会社下館事業所内

(74)代理人 100071559

弁理士 若林 邦彦

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 封止用エポキシ樹脂組成物及び電子部品装置

(57)【要約】

【課題】レーザーマーク性や電気特性に優れ、パッド間やワイヤー間距離が狭い電子部品装置においても、導電性物質によるショート不良が発生せず、かつ成形性、信頼性、パッケージ表面の外観に優れた封止用エポキシ樹脂組成物及びそれを用いた電子部品装置を提供する。

【解決手段】(A)エポキシ樹脂、(B)硬化剤、

(C)非導電性カーボン及び(D)無機充填材を必須成分とする封止用エポキシ樹脂組成物、及びこの封止用エポキシ樹脂組成物により封止された素子を備えた電子部品装置。

【特許請求の範囲】

【請求項1】(A)エポキシ樹脂、(B)硬化剤、
(C)非導電性カーボン及び(D)無機充填材を必須成分とする封止用エポキシ樹脂組成物。

【請求項2】非導電性カーボンの電気抵抗が $10^7\Omega$ 以上である請求項1記載の封止用エポキシ樹脂組成物。

【請求項3】非導電性カーボンの含有量が、樹脂組成物全体の0.1～10重量%である請求項1又は請求項2記載の封止用エポキシ樹脂組成物。

【請求項4】請求項1～3のいずれかに記載の封止用エポキシ樹脂組成物により封止された素子を備えた電子部品装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、レーザーマーク性、電気特性、成形性、信頼性及びパッケージ表面の外観に優れた封止用エポキシ樹脂組成物及びこれにより封止された素子を備えた電子部品装置に関する。

【0002】

【従来の技術】IC、LSI等の半導体素子は、素子の集積度の向上と共に、素子のパッケージに対する占有体積の拡大、半導体装置等の電子部品装置の小型化、薄型化、多ピン化が進んでいる。さらに、電子機器の小型化、薄型化に対応し、実装方法も高密度実装を可能とする表面実装方式がピン挿入型方式に代わり、急速に普及している。その結果、電子部品装置を基板へ取り付ける時に、電子部品装置自体が短時間の内に200°C以上の半田浴といった高温に曝される。この時、封止材中に含まれる水分が気化し、ここで発生する蒸気圧が封止材と素子、リードフレーム等のインサートとの界面において剥離応力として働き、封止材とインサートとの間で剥離が発生し、特に薄型の電子部品装置においては、電子部品装置のフクレやクラックに至ってしまう。このような剥離起因によるフクレ、クラックの防止策として、素子表面又はリードフレームのアイランド裏面にコート材を用いて封止材との密着性を向上させる手法、リードフレームのアイランド裏面にディンブル加工やスリット加工等を行なう、あるいはLOC(Lead on Chip)構造にして封止材との密着性を向上させる手法が用いられているが、高コスト化、効果が不十分等の問題がある。さらに、LOC構造の場合、パッケージ表面の色むらが生じ外観を損ねる。また、半導体装置等の電子部品装置の小型化、多ピン化に伴い、インナーリード間やパッド間、ワイヤー間などピッチ間距離が狭くなってきており、封止材中に含まれるカーボンブラック等の導電性物質が大きな粗粒として存在する場合には、インナーリード間やパッド間そしてワイヤー間に導電性であるカーボンブラックが狭まり、電気特性不良に至ってしまう。このため、着色剤としてカーボンブラックの代わりに有機染料や顔料等を用いる検討がなされている(特開昭63-1

79921号公報、特開平11-60904号公報)

が、YAGレーザーマーク性の低下、信頼性の低下、高コスト化等の問題があった。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、かかる状況に鑑みてなされたもので、レーザーマーク性や電気特性に優れ、パッド間やワイヤー間距離が狭い半導体装置等の電子部品装置においても、導電性物質によるショート不良が発生せず、かつ成形性、信頼性、パッケージ表面の外観に優れた封止用エポキシ樹脂組成物及びこれにより封止した素子を備えた電子部品装置を提供することを目的とする。

【0004】

【課題を解決するための手段】本発明者らは上記の課題を解決するために鋭意検討を重ねた結果、封止用エポキシ樹脂組成物に非導電性カーボンを配合することにより上記の目的を達成しうることを見い出し、本発明を完成するに至った。すなわち、本発明は、

(1) (A)エポキシ樹脂、(B)硬化剤、(C)非導電性カーボン及び(D)無機充填材を必須成分とする封止用エポキシ樹脂組成物、

(2) 非導電性カーボンの電気抵抗が $10^7\Omega$ 以上である上記(1)記載の封止用エポキシ樹脂組成物、及び

(3) 非導電性カーボンの含有量が、樹脂組成物全体の0.1～10重量%である上記(1)又は(2)記載の封止用エポキシ樹脂組成物、並びに

(4) 上記(1)～(3)のいずれかに記載の封止用エポキシ樹脂組成物により封止された素子を備えた電子部品装置に関する。

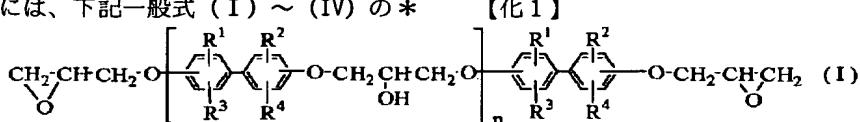
【0005】

【発明の実施の形態】本発明において用いられる(A)エポキシ樹脂としては特に制限はないが、例えば、封止用エポキシ樹脂組成物で一般に使用されている、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂、ビスフェノールAノボラック型エポキシ樹脂をはじめとするフェノール類とアルデヒド類から合成されるノボラック樹脂をエポキシ化したエポキシ樹脂、アルキル置換又は非置換のビフェノール型エポキシ樹脂、アルキル置換又は非置換のグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、イソシアヌル酸等のポリアミンとエピクロルヒドリンの反応により得られるグリシジルアミン型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、ジクロペンタジエンとフェノール類及び/又はナフトール類の共縮合樹脂のエポキシ化物、ナフタレン環を有するエポキシ樹脂、フェノール・アラルキル樹脂、ナフトール・アラルキル樹脂等のアラルキル型フェノール樹脂のエポキシ化物、トリメチロールプロパン型エポキシ樹脂、テルペン変性エポキシ樹脂、オレフィン結合を過酢酸等の過酸で酸化して得られる線状脂肪族エポキシ樹脂、脂環族エポキシ樹脂などが挙げられ、これらは単独

40 テル型エポキシ樹脂、イソシアヌル酸等のポリアミンとエピクロルヒドリンの反応により得られるグリシジルアミン型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、ジクロペンタジエンとフェノール類及び/又はナフトール類の共縮合樹脂のエポキシ化物、ナフタレン環を有するエポキシ樹脂、フェノール・アラルキル樹脂、ナフトール・アラルキル樹脂等のアラルキル型フェノール樹脂のエポキシ化物、トリメチロールプロパン型エポキシ樹脂、テルペン変性エポキシ樹脂、オレフィン結合を過酢酸等の過酸で酸化して得られる線状脂肪族エポキシ樹脂、脂環族エポキシ樹脂などが挙げられ、これらは単独

で用いても2種以上を組み合わせて用いてよい。

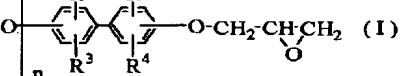
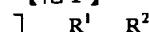
【0006】具体的には、下記一般式(I)～(IV)の*



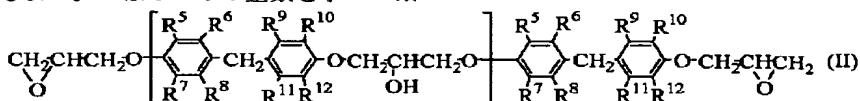
*いすれかにより示される化合物などが挙げられる。

(ここで、R¹～R⁴は水素原子及び炭素数1～10の置換又は非置換の一価の炭化水素基から選ばれ、全てが同一でも異なっていてよい。nは0～3の整数を示す。)

【化1】



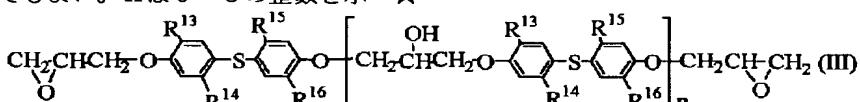
【化2】



(ここで、R⁵～R¹²は水素原子及び炭素数1～10の置換又は非置換の一価の炭化水素基から選ばれ、全てが同一でも異なっていてよい。nは0～3の整数を示す。)

★す。)

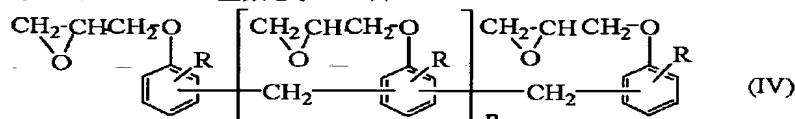
【化3】



(ここで、R¹³～R¹⁶は水素及び炭素数1～10の置換又は非置換の一価の炭化水素基から選ばれ、すべて同一でも異なっていてよい。nは0～10の整数を示す。)

★す。)

【化4】



(ここで、Rは水素及び炭素数1～10の置換又は非置換の一価の炭化水素基から選ばれ、nは0～10の整数を示す。)

【0007】上記一般式(I)中のR¹～R⁴は、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、イソブチル基等のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基等のアルコキシル基、フェニル基、トリル基、キシリル基等のアリール基、ベンジル基、フェネチル基等のアラルキル基、メトキシメチル基、エトキシメチル基メトキシエチル基等のアルコキシアルキル基、アミノメチル基、アミノエチル基等のアミノ基置換アルキル基などの炭素数1～10の置換又は非置換の一価の炭化水素基から選ばれるが、中でも水素原子又はメチル基が好ましい。上記一般式(I)で示されるビフェニル型エポキシ樹脂としては、4, 4' - ビス(2, 3-エポキシプロポキシ)ビフェニル又は4, 4' - ビス(2, 3-エポキシプロポキシ) - 3, 3', 5, 5' - テトラメチルビフェニルを主成分とするエポキシ樹脂、エピクロロヒドリンと4, 4' - ビフェノール又は4, 4' - (3, 3', 5, 5' - テトラメチル)ビフェノールとを反応させて得られるエポキシ樹脂等が挙げられ、中でも、4, 4'

30 ピス(2, 3-エポキシプロポキシ) - 3, 3', 5, 5' - テトラメチルビフェニルを主成分とするエポキシ樹脂がより好ましい。

【0008】上記一般式(II)中のR⁵～R¹²は、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、イソブチル基等のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基等のアルコキシル基、フェニル基、トリル基、キシリル基等のアリール基、ベンジル基、フェネチル基等のアラルキル基、メトキシメチル基、エトキシメチル基メトキシエチル基等のアルコキシアルキル基、アミノメチル基、アミノエチル基等のアミノ基置換アルキル基などの炭素数1～10の置換又は非置換の一価の炭化水素基から選ばれるが、中でも水素原子又はメチル基が好ましい。上記一般式(II)で示されるビスフェノールF型エポキシ樹脂としては、例えば、R⁵、R⁷、R¹⁰及びR¹¹がメチル基で、R⁶、R⁸、R⁹及びR¹²が水素原子であり、n=0を主成分とするESLV-80XY(新日鉄化学株式会社製商品名)が市販品として入手可能である。

【0009】上記一般式(III)中のR¹³～R¹⁶は、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、t-ブチル基、アミル基、イソブ

5
チル等のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基等のアルコキシル基、フェニル基、トリル基、キシリル基等のアリール基、ベンジル基、フェネチル基等のアラルキル基、メトキシメチル基、エトキシメチル基メトキシエチル基等のアルコキシアルキル基、アミノメチル基、アミノエチル基等のアミノ基置換アルキル基などの炭素数1～10の置換又は非置換の一価の炭化水素基から選ばれるが、中でもアルキル基が好ましく、メチル基又はt-ブチル基がより好ましい。上記一般式(III)で示されるフェニルスルフィド型エポキシ樹脂としては、入手性及び流動性の観点から、R¹³及びR¹⁴がt-ブチル基で、R¹¹及びR¹⁵がメチル基で、nが0である化合物を主成分とするビス(2-メチル-4-ヒドロキシ-5-t-ブチル)チオエーテルのエポキシ化物が好ましい。

【0010】上記一般式(IV)中のRとしては、例えば、水素、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、t-ブチル基等のアルキル基、ビニル基、アリル基、ブテニル基等のアルケニル基、ハログン化アルキル基、アミノ基置換アルキル基、メルカブト基置換アルキル基などの炭素数1～10の置換又は非置換の一価の炭化水素基が挙げられ、中でもメチル基、エチル基等のアルキル基が好ましく、メチル基がより好ましい。上記一般式(IV)で示されるノボラック型エポキシ樹脂としては、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂等が挙げられ、中でもオルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂が好ましい。

【0011】本発明において用いられる(B)硬化剤としては特に制限はないが、例えば、封止用エポキシ樹脂組成物で一般に使用されているもので、フェノール、クレゾール、レゾルシン、カテコール、ビスフェノールA、ビスフェノールF等のフェノール類及び/又はα-ナフトール、β-ナフトール、ジヒドロキシナフタレン等のナフトール類とホルムアルデヒド等のアルデヒド類とを酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られる樹脂、フェノール・アラルキル樹脂、ナフトール・アラルキル樹脂等のアラルキル型フェノール樹脂などが挙げられ、これらは単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。

(B)硬化剤は、上記(A)エポキシ樹脂のエポキシ基当量に対して、フェノール水酸基当量が0.5～1.5当量となる量で配合されることが好ましく、より好ましくは0.8～1.2当量で配合される。0.5当量未満ではエポキシ樹脂の硬化が不十分となり、硬化物の耐熱性、耐湿性並びに電気特性が劣る傾向があり、1.5当量を超えると硬化剤成分が過剰になり硬化樹脂中に多量のフェノール性水酸基が残るため、電気特性並びに耐湿性が悪くなる傾向がある。

【0012】本発明の封止用エポキシ樹脂組成物には、

エポキシ基とフェノール性水酸基とのエーテル化反応を促進するため、硬化促進剤を配合することが好ましい。硬化促進剤としては、エポキシ樹脂と硬化剤の反応を促進させるような触媒機能を持つ化合物であれば特に制限はないが、例えば、1,8-ジアザーピシクロ(5,4,0)ウンデセン-7、1,5-ジアザーピシクロ(4,3,0)ノネン、5,6-ジブチルアミノ-1,8-ジアザーピシクロ(5,4,0)ウンデセン-7、ベンジルジメチルアミン、トリエタノールアミン、ジメチルアミノエタノール、トリス(ジメチルアミノメチル)フェノール等の3級アミン類及びこれらの誘導体、2-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、2-フェニル-4-メチルイミダゾール等のイミダゾール類及びこれらの誘導体、トリブチルホスфин、メチルジフェニルホスфин、トリフェニルホスфин、ジフェニルホスфин、フェニルホスфин等の有機ホスфин類及びこれらのホスфин類に無水マレイン酸、ベンゾキノン、ジアゾフェニルメタン等のπ結合をもつ化合物を付加してなる分子内分極を有するリン化合物、テトラフェニルホスホニウムテトラフェニルボレート、トリフェニルホスфинテトラフェニルボレート、2-エチル-4-メチルイミダゾールテトラフェニルボレート、N-メチルテトラフェニルホスホニウム-テトラフェニルボレート、トリフェニルホスホニウム-トリフェニルボラン等が挙げられ、これらは単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。硬化促進剤の配合量は、エポキシ樹脂100重量部に対して0.01～5重量部が好ましく、0.1～3重量部を配合するのがより好ましい。0.01重量部より少ないと促進効果が小さく、5重量部より多いと保存安定性が悪くなる傾向にある。

【0013】本発明において用いられる(C)非導電性カーボンとしては特に制限はないが、例えば、ポリマーを焼成させて得られる非導電性ポリマー焼成カーボン、カーボンブラックの表面にポリマーをグラフトさせて得られるグラフトカーボン、カーボンブラックの表面をシリカ等の絶縁無機物で覆うことによって得られるカーボン内包フィラー、酸化処理等の表面処理を施したカーボンブラックなどが挙げられ、これらは単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。また、これらの非

導電性カーボンをエポキシ樹脂、フェノール樹脂等でコートして用いることもできる。非導電性ポリマー焼成カーボンの製造法には特に制限はないが、例えば、ナフタレン等の芳香族を有するスルホン酸ポリマーなどのポリマーを400～600℃で焼成する方法が挙げられる。グラフトカーボンの製造法には特に制限はないが、例えば、エポキシ基、チオエポキシ基、アジリジン基、オキサゾリン基、イソシアネート基等のカーボンブラック表面のカルボキシル基と反応性を有する基を有するグラフトポリマーを、熱によりカーボンブラックに不可逆的付加反応させる方法が挙げられる。ここで用いられるグラ

フトポリマーとしては特に制限はないが、上記の反応性基を有する不飽和化合物をそれと共に重合可能な单量体と共に重合させて得られるもので、例えば、ポリスチレン、ポリエチレングリコール、ポリオキサゾリン、ポリプロピレングリコール、ポリメタクリル酸メチル、アクリル樹脂、フッ素樹脂等及びこれらの誘導体、ポリジメチルシロキサン等のシリコーン、ワックスなどが挙げられ、これらは単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。グラフトカーボンに用いられるカーボンブラックとしては特に制約はないが、グラフトポリマーとの反応点であるカルボキシル基等の酸性官能基が表面に多く存在するものが好ましく、pHが7以下のカーボンブラックがより好ましい。グラフトカーボンのグラフト率は非導電性の観点から30重量%以上が好ましく、50重量%以上がより好ましい。ここで、グラフト率とはグラフトカーボン全体に占めるグラフトポリマーの割合をさす。カーボン内包フィラーの製造法には特に制限はないが、例えば、水溶液中に分散させたカーボンブラックの表面に、テトラエトキシシランを加水分解させることによってシリカ微粒子を沈着させる方法、水溶液中に分散させたカーボンブラックにシリカゾルを添加しゾルゲル法によってシリカ微粒子を沈着させる方法等が挙げられる。カーボンブラックの表面を覆う絶縁無機物としては特に制限はないが、例えば、炭酸カルシウム、炭酸バリウム等のアルカリ土類金属炭酸塩、珪酸カルシウム、珪酸マグネシウム等のアルカリ土類金属珪酸塩、酸化鉄、シリカ、アルミナ、酸化銅、酸化コバルト、酸化ニッケル等の金属酸化物、炭酸コバルト、炭酸ニッケル、塩基性炭酸銅、水酸化アルミニウム、ダイレクトブラック154カルシウムレーキなどが挙げられ、これらは単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。カーボン内包フィラーに用いられるカーボンブラックとしては特に制限はないが、水に濡れやすく、かさ高くないものが好ましい。カーボン内包フィラーのカーボン内包率は、非導電性の観点から70重量%以下が好ましく、50重量%以下がより好ましい。ここで、カーボン内包率とは、カーボン内包フィラー全体に占めるカーボンブラックの割合をさす。表面処理を施したカーボンブラックの製造法としては、特に制限はないが、例えば、空気酸化法、硝酸、窒素酸化物と空気の混合ガス、オゾン等の酸化剤を用いる酸化処理法、シランカップリング剤を用いる方法等でカーボンブラックを表面処理する方法などが挙げられる。

【0014】(C) 非導電性カーボンの電気抵抗は、 $10^7 \Omega$ 以上が好ましく、 $10^9 \Omega$ 以上がより好ましい。電気抵抗は、JIS Z 3197に準拠した、ガラス布基材エポキシ樹脂銅張積層板MCL-E67(日立化成工業株式会社製商品名)を基板とした2形のくし型電極(銅箔厚 $3.5 \mu\text{m}$ 、線幅 0.3 mm 、線間 0.3 mm 、基板厚 0.95 mm)を用い、粉末サンプル 0.5 g を配線

上にセロハンテープで固定し、抵抗計(タケダ理研工業株式会社製TR8601)により直流 500 V で1分後の抵抗値を測定することにより求められる。

(C) 非導電性カーボンの平均粒径は、 $0.3 \sim 50 \mu\text{m}$ が好ましく、 $0.3 \sim 30 \mu\text{m}$ がより好ましい。レーザーマーク性、成形性の観点からは $0.3 \sim 10 \mu\text{m}$ が好ましく、 $0.3 \sim 5 \mu\text{m}$ がより好ましい。

(C) 非導電性カーボンの含有量は、封止用エポキシ樹脂組成物全体に対し $0.1 \sim 10$ 重量%が好ましく、

10 0.3~8重量%がより好ましく、0.5~4重量%がさらに好ましい。0.1重量%未満ではパッケージ表面の外観が損なわれたり、遮光性、レーザーマーク性が不十分となったりする場合があり、10重量%を超えると成形性が不十分となる傾向がある。

【0015】充填材としては、吸湿性低減及び強度向上の観点から無機充填材を用いることが必要である。本発明に用いられる(D)無機充填材としては特に制限はないが、例えば、封止用エポキシ樹脂組成物で一般に使用されているもので、溶融シリカ、結晶シリカ、アルミ

20 ナ、ジルコン、珪酸カルシウム、炭酸カルシウム、炭化珪素、窒化ホウ素、ベリリア、ジルコニア等の粉体、又はこれらを球形化したビーズ、チタン酸カリウム、炭化珪素、窒化珪素、アルミナ等の単結晶繊維、ガラス繊維などが挙げられ、これらは単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。また、難燃効果のある無機充填材としては水酸化アルミニウム、棚酸亜鉛等が挙げられ、これらは単独で用いても併用してもよい。中でも、線膨張係数低減の観点からは溶融シリカが、高熱伝導性の観点からはアルミナが好ましく、無機充填材の形状

30 は、成形時の流動性及び金型摩耗性の点から球形が好ましい。

(D) 無機充填材の配合量としては、吸湿性、線膨張係数の低減、強度向上及び半田耐熱性の観点から、封止用エポキシ樹脂組成物全体に対し $70 \sim 98$ 重量%が好ましい。より好ましくは、 $75 \sim 95$ 重量%の範囲である。

【0016】本発明の封止用エポキシ樹脂組成物には、無機充填材と樹脂成分との親和性をはかる観点からはカップリング剤を添加することが好ましい。用いられるカ

40 ッピング剤としては特に制限はなく、例えば、封止用エポキシ樹脂組成物で一般に使用されているもので、ビニルトリクロロシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリス(β -メトキシエトキシ)シラン、 γ -メタクリロキシプロビルトリメトキシシラン、 β -(3,4-エポキシジクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、 γ -グリシドキシプロビルトリメトキシシラン、ビニルトリアセトキシシラン、 γ -メルカブトプロビルトリメトキシシラン、 γ -アミノプロビルトリエトキシシラン、 γ -[ビス(β -ヒドロキシエチル)]アミノブロビルトリエトキシシラン、N- β -(アミノエチル)

—アーアミノプロピルトリメトキシシラン、 γ -（ β -アミノエチル）アミノプロピルジメトキシメチルシラン、N-（トリメトキシシリルプロピル）エチレンジアミン、N-（ジメトキシメチルシリルイソプロピル）エチレンジアミン、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、N- β -（N-ビニルベンジルアミノエチル）—アーアミノプロピルトリメトキシシラン、 γ -クロロプロピルトリメトキシシラン、ヘキサメチルジシラン、 γ -アニリノプロピルトリメトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、 γ -メルカブトプロピルメチルジメトキシシラン等のシラン系カップリング剤、イソプロピルトリイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリス（ジオクチルバイロホスフェート）チタネート、イソプロピルトリ（N-アミノエチルアミノエチル）チタネート、テトラオクチルビス（ジトリデシルホスファイト）チタネート、テトラ（2,2-ジアリルオキシメチル-1-ブチル）ビス（ジトリデシル）ホスファイトチタネート、ビス（ジオクチルバイロホスフェート）オキシアセテートチタネート、ビス（ジオクチルバイロホスフェート）エチレンチタネート、イソプロピルトリオクタノイルチタネート、イソプロピルジタクリリイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリドデシルベンゼンスルホニルチタネート、イソプロピルイソステアロイルジアクリルチタネート、イソプロピルトリ（ジオクチルホスフェート）チタネート、イソプロピルトリクミルフェニルチタネート、テトライソプロピルビス（ジオクチルホスファイト）チタネート等のチタネート系カップリング剤などが挙げられ、これらは単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。

【0017】その他の添加剤として、高級脂肪酸例えはカルナバワックスとポリエチレン系ワックス等の離型材、シリコーンオイル、シリコーンゴム等の改質材、ハイドロタルサイト、アンチモンービスマス等のイオントラッパーなどを必要に応じて、それぞれ単独で又は2種以上を組み合わせて配合することができる。また、本発明の封止用エポキシ樹脂組成物には、本発明の効果が達成される範囲内であれば、非導電性カーボン以外に、アジン系染料、アントラキノン系染料、ジスアゾ系染料、ジイミニウム系染料、アミニウム系染料、ジイモニウム系染料、Cr錯体、Fe錯体、Co錯体、Ni錯体、Fe, Cu, Ni等の金属化合物、Al, Mg, Fe等の金属酸化物、雲母、近赤外吸収材、フタロシアニン系顔料、フタロシアニン系染料、カーボンブラックなどの着色剤を1種又は2種以上併用することができる。特に、レーザーマーク性、流動性、硬化性の点からはフタロシアニン系染料を併用することが好ましい。カーボンブラック等の導電性粒子を併用する場合には、本発明の目的を達成するために、分散性に優れる、比表面積が130m²/g以下、DBP吸油量が120cm³/100g以下のものが好ましく、比表面積が100m²/g以下、

DBP吸油量が80cm³/100g以下のものがより好ましい。

【0018】本発明の封止用エポキシ樹脂組成物は、上記各原材料を均一に分散混合できるのであれば、いかなる手法を用いても調製できるが、一般的な方法としては、所定の配合量の原材料をミキサー等によって充分混合した後、熱ロール、押出機等によって混練し、冷却、粉碎する方法を挙げることができる。成形条件に合うような寸法及び重量でタブレット化すると使いやすい。

【0019】本発明の封止用エポキシ樹脂組成物は、レーザーマーク性、電気特性に優れ、且つ成形性、信頼性、スケルトン防止に優れており、IC、LSI等の封止に好適に用いることができる。本発明で得られる封止用エポキシ樹脂組成物により封止した素子を備えた電子部品装置としては、リードフレーム、配線済みのテープキャリア、配線板、ガラス、シリコンウエハ等の支持部材に、半導体チップ、トランジスタ、ダイオード、サイリスタ等の能動素子、コンデンサ、抵抗体、コイル等の受動素子等の素子を搭載し、必要な部分を本発明の封止用エポキシ樹脂組成物で封止した、電子部品装置などが挙げられる。このような電子部品装置としては、例えば、リードフレーム上に半導体素子を固定し、ボンディングパッド等の素子の端子部とリード部をワイヤボンディングやバンプで接続した後、本発明の封止用エポキシ樹脂組成物を用いてトランスファ成形などにより封止してなる、DIP（Dual Inline Package）、PLCC（Plastic Leaded Chip Carrier）、QFP（Quad Flat Package）、SOP（Small Outline Package）、SOJ（Small Outline J-lead package）、TSOP（Thin Small Outline Package）、TQFP（Thin Quad Flat Package）等の一般的な樹脂封止型IC、テープキャリアにバンプで接続した半導体チップを、本発明の封止用エポキシ樹脂組成物で封止したTCP（Tape Carrier Package）、配線板やガラス上に形成した配線に、ワイヤボンディング、フリップチップボンディング、はんだ等で接続した半導体チップ、トランジスタ、ダイオード、サイリスタ等の能動素子及び／又はコンデンサ、抵抗体、コイル等の受動素子を、本発明の封止用エポキシ樹脂組成物で封止したCOB（ChipOn Board）モジュール、

40 ハイブリッドIC、マルチチップモジュール、裏面に配線板接続用の端子を形成した有機基板の表面に素子を搭載し、バンプまたはワイヤボンディングにより素子と有機基板に形成された配線を接続した後、本発明の封止用エポキシ樹脂組成物で素子を封止したBGA（Ball Grid Array）、CSP（Chip Size Package）などが挙げられる。また、プリント回路板にも本発明の封止用エポキシ樹脂組成物は有効に使用できる。本発明で得られる封止用エポキシ樹脂組成物を用いて電子部品装置を封止する方法としては、低圧トランスファー成形法が最も一般的であるが、インジェクション成形、圧縮成形、注型等の

方法を用いてもよい。

【0020】

【実施例】以下に本発明を実施例により詳細に説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

実施例1～9、比較例1～4

まず、表1及び表2に示す配合成分を予備混合（ドライ*

表1 配合組成1

配合成分	実施例 (配合量：重量部)								
	1	2	3	4	5	6	7	8	9
ビフェニル型エポキシ樹脂	85.0	85.0	85.0	85.0	85.0	85.0	85.0	85.0	85.0
臭素化エポキシ樹脂	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0
アラルキル型フェノール樹脂	87.0	87.0	87.0	87.0	87.0	87.0	87.0	87.0	87.0
トリフェニルホスフィン	3.0	3.0	3.0	3.0	3.0	3.0	3.0	3.0	3.0
エポキシシラン	7.6	7.6	7.6	7.6	7.6	7.6	7.6	7.6	7.6
カルナバワックス	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
ポリエチレンワックス	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
非導電性カーボンA	55.0	—	—	20.0	20.0	10.0	—	—	30.0
非導電性カーボンB	—	60.0	—	—	30.0	20.0	—	—	—
非導電性カーボンC	—	—	65.0	—	—	30.0	—	—	—
非導電性カーボンD	—	—	—	—	—	—	50.0	—	—
非導電性カーボンE	—	—	—	—	—	—	—	30.0	—
カーボンブラックA	—	—	—	2.0	—	—	—	—	—
フタロシアニン系染料	—	—	—	—	—	—	—	—	1.0
三酸化アンチモン	12	12	12	12	12	12	12	12	12
溶融シリカ	1550	1550	1550	1550	1550	1550	1550	1550	1550

【0022】

【表2】

表2 配合組成2

(配合量：重量部)

配合成分	比較例			
	1	2	3	4
ビフェニル型エポキシ樹脂	85.0	85.0	85.0	85.0
臭素化エポキシ樹脂	15.0	15.0	15.0	15.0
アラルキル型フェノール樹脂	87.0	87.0	87.0	87.0
トリフェニルホスフィン	3.0	3.0	3.0	3.0
エポキシシラン	7.6	7.6	7.6	7.6
カルナバワックス	1.5	1.5	1.5	1.5
ポリエチレンワックス	1.5	1.5	1.5	0.5
カーボンブラックB	3.5	1.5	—	—
アジン系染料	—	10.0	35.0	—
雲母-黒酸化鉄系染料	—	—	—	30.0
三酸化アンチモン	12	12	12	15
溶融シリカ	1550	1550	1550	1550

【0023】なお、表1及び表2記載の配合成分は次の通りである。

ビフェニル型エポキシ樹脂：油化シェルエポキシ株式会社製商品名YX-4000H

臭素化エポキシ樹脂：東都化成株式会社製商品名YDB-400

アラルキル型フェノール樹脂：三井化学株式会社製商品名XL-225-3L

エポキシシラン：日本ユニカー株式会社製商品名A-187

ポリエチレンワックス：クラリアントジャパン株式会社製商品名PED-191

非導電性カーボンA：三井鉱山株式会社製商品名CB-3-500（平均粒径3μm、電気抵抗10⁹Ω）

非導電性カーボンB：三井鉱山株式会社製商品名CB-7-500（平均粒径7μm、電気抵抗10⁹Ω）

非導電性カーボンC：三井鉱山株式会社製商品名CB-

*ブレンド）した後、二軸ロール（ロール表面温度80°C）で10分間混練し、冷却粉碎して実施例及び比較例の封止用エポキシ樹脂組成物を製造した。

【0021】

【表1】

(配合量：重量部)

10-500（平均粒径10μm、電気抵抗10⁹Ω）

非導電性カーボンD：スチレン/アクリル系グラフトポリマーを用いたグラフト率90重量%のグラフトカーボン（株式会社日本触媒製、電気抵抗10¹⁰Ω）

非導電性カーボンE：カーボン内包率17重量%のカーボン内包シリカ（鈴木油脂工業株式会社製、平均粒径7μm、電気抵抗10⁹Ω）

カーボンブラックA：比表面積8.9m²/g、DBP吸油量6.0cm³/100gのカーボンブラック

カーボンブラックB：比表面積14.0m²/g、DBP吸油量13.1cm³/100gのカーボンブラック

フタロシアニン系染料：山本化成株式会社製商品名YKR-3080

アジン系染料：住友化学工業株式会社製商品名スピリットブラック920

雲母-黒酸化鉄系染料：メルクジャパン株式会社製商品名LS835

溶融シリカ：マイクロロン株式会社製商品名S-CO

【0024】実施例、比較例の封止用エポキシ樹脂組成物を次に示す各試験により評価した。なお、封止用エポキシ樹脂組成物の成形は、トランスファ成形機を用い、金型温度180°C、成形圧力6.9MPa、硬化時間90秒の条件で行なった。また、後硬化（ポストキュア）は175°Cで6時間行った。

(1) スパイラルフロー

EMM11-66に準じた金型をトランスファ成形機にセットし、上記条件で封止用エポキシ樹脂組成物を成形し、流動距離(cm)を求めた。

(2) 熱時硬度

50 パリ測定金型(幅5mm、深さ50、30、20、1

13

0、5、2 μmのスリットを設けた金型)をトランスファ成形機にセットし、上記条件で封止用エポキシ樹脂組成物を成形し、金型開放10秒後、樹脂溜り部分をショア硬度計にて測定した。

(3) 体積抵抗率

円板金型をトランスファ成形機にセットし、封止用エポキシ樹脂組成物を上記条件で直径100mm、厚さ3mmの円板に成形し後硬化した後、体積抵抗計を用いて、電圧500V、150°Cで測定し、絶縁性を確認した。

(4) 耐湿性

耐湿性に用いた電子部品装置はSOP-28ピンのSOP28ピンの樹脂封止型半導体装置(外形寸法18×8.4×2.6mm)であり、リードフレームは42アロイ材(加工ディンプル)で9.6×5.1mmのTEGチップ(A1配線10及び20ミクロン幅、ギャップ10及び20ミクロン、パッシベーションなし)を有するもので、上記条件でトランスファ成形、後硬化を行って作製した。85°C/85RH%で72時間吸湿した後、240°C/10秒(IRリフロー)の前処理後、PCT処理(121°C/0.2MPa)してチップ上配線の断線の有無を確認し、断線パッケージが試験パッケージ中50%に達するまでのPCT処理時間で評価した。

(5) 半田耐熱性

半田耐熱性に用いた電子部品装置は、QFP-80ピンの樹脂封止型半導体装置(外形寸法20×14×2.0mm)であり、リードフレームは42アロイ材(加工な*

表3 評価結果1

項目	単位	実施例								
		1	2	3	4	5	6	7	8	9
スパイアルフロー	cm	84	89	94	99	97	94	81	84	94
熱時硬度	-	80	80	81	80	81	81	80	81	81
体積抵抗率	Ω·cm	6×10 ¹³	7×10 ¹³	6×10 ¹³	1×10 ¹³	5×10 ¹³	4×10 ¹³	1×10 ¹³	5×10 ¹³	4×10 ¹³
耐湿性	h	650	650	600	720	600	650	650	600	650
半田耐熱性	h	120	120	120	120	120	120	120	120	120
レーザーマーク性	-	良好								
電気特性(リーク電流の有無)	-	無	無	無	無	無	無	無	無	無
黒色度	-	26.4	28.9	29.5	26.5	27.6	28.7	28.2	28.3	27.9
総合判定	-	○	○	○	○	○	○	○	○	○

【0026】

【表4】

表4 評価結果2

項目	単位	比較例			
		1	2	3	4
スパイアルフロー	cm	97	89	64	76
熱時硬度	-	81	80	79	80
体積抵抗率	Ω·cm	3×10 ¹³	9×10 ¹¹	8×10 ¹¹	8×10 ¹⁰
耐湿性	h	650	310	240	600
半田耐熱性	h	120	96	48	96
レーザーマーク性	-	良好	良好	良好	良好
電気特性(リーク電流の有無)	-	有	無	無	有
黒色度	-	27.8	28.2	28.5	28.2
総合判定	-	×	×	×	×

【0027】本発明の着色剤として非導電性カーボンを

50 用いていない比較例1~4は、いずれも満足な特性を得

*し)で8×10mmのチップサイズを有するもので、上記条件でトランスファ成形、後硬化を行って作製した。このようにして得られた樹脂封止型半導体装置を、85°C/85RH%で所定の時間吸湿した後、240°C/10秒の処理を行なった時のクラック発生を観察し、外観クラックが発生するまでの吸湿時間により半田耐熱性を評価した。

(6) レーザーマーク性

レーザーマーク性評価に用いた電子部品装置は、QFP-54ピンの樹脂封止型半導体装置であり、パッケージ表面をYAGレーザーマーキング装置で、YAGレーザー波長1064nm、レーザーパワー5Jの条件で印字し、目視でマーク性を評価した。

(7) 電気特性

電気特性の評価に用いた電子部品装置は、LQFP(Low profile Quad Flat Package)176ピンの樹脂封止型半導体装置であり、リーク電流の有無で評価した。

(8) 黒色度

黒色度は、円板金型をトランスファ成形機にセットし、封止用エポキシ樹脂組成物を上記条件で表面が梨地である直径100mm、厚さ2mmの円板に成形し後硬化した後、色差計にて測定した。黒色度は値が小さいほど黒色を示す。上記の試験結果を表3及び表4に示す。

【0025】

【表3】

られない。すなわち、導電性のカーボンブラックを用いた比較例1は電気特性に劣り、アジン系染料を用いた比較例2、3は耐湿性及び半田耐熱性に劣る。雲母-黒酸化鉄系染料を用いた比較例4は半田耐熱性及び電気特性に劣る。これに対して、実施例1～9は、耐湿性、半田耐熱性等の信頼性及び電気特性に優れ、レーザマーク性、黒色度も良好である。

【0028】

【発明の効果】本発明になる封止用エポキシ樹脂組成物は、実施例に示したように成形性が良好で、レーザマーク性、電気特性、信頼性、パッケージ表面の外観に優れる電子部品装置が得られるので、その工業的価値は大である。。

フロントページの続き

F ターム(参考) 4J002 CC03X CC04X CC05X CC06X
 CD00W CD01W CD02W CD05W
 CD06W CD14W CE00X DA036
 DE097 DE147 DE187 DE237
 DJ007 DJ017 DK007 DL007
 FA047 FA087 FB076 FB107
 FB117 FB137 FB147 FB157
 FB167 FB177 FB207 FB217
 FB266 FD017 FD090 FD126
 FD14X FD150 FD160 GQ05
 4M109 AA01 CA01 CA21 CA22 EA03
 EA04 EA05 EB03 EB04 EB06
 EB07 EB08 EB09 EB12 EB13
 EB18 EB19 EC07 EC13 EC20